

(19)

Europäisches Patentamt

European Patent Office

Office européen des brevets



(11)

EP 0 885 653 A2

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:  
23.12.1998 Patentblatt 1998/52

(21) Anmeldenummer: 98110491.2

(22) Anmeldetag: 08.06.1998

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>: B01J 10/00, B01J 12/00,  
B01J 14/00, B01J 15/00,  
B01J 16/00, B01J 19/24

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU  
MC NL PT SE  
Benannte Erstattungsstaaten:  
AL LT LV MK RO SI

(30) Priorität: 16.06.1997 DE 19725378

(71) Anmelder:  
• Friedrich, Gerhard  
75428 Illingen (DE)  
• Opferkuch, Frank  
72622 Nürtingen (DE)  
• Galsner, Gerd  
72768 Reutlingen (DE)

• Kolios, Grigorios  
70197 Stuttgart (DE)  
• Eigenberger, Gerhart  
70597 Stuttgart (DE)

(72) Erfinder:  
• Friedrich, Gerhard  
75428 Illingen (DE)  
• Opferkuch, Frank  
72622 Nürtingen (DE)  
• Galsner, Gerd  
72768 Reutlingen (DE)  
• Kolios, Grigorios  
70197 Stuttgart (DE)  
• Eigenberger, Gerhart  
70597 Stuttgart (DE)

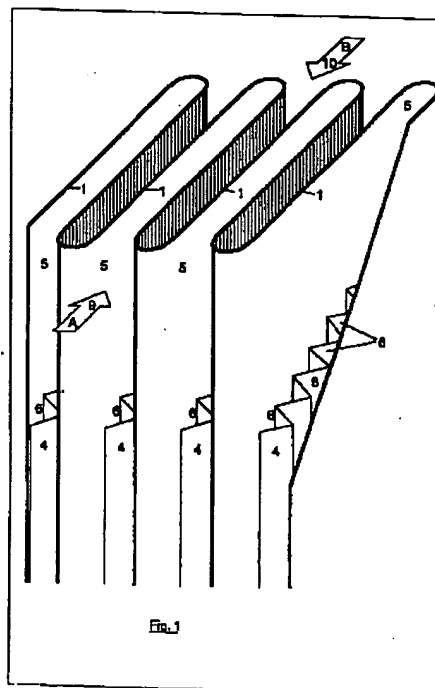
### (54) Kompakter Festbettreaktor für katalytische Reaktionen mit integriertem Wärmeaustausch

(57) Die Erfindung betrifft kompakte Reaktoren für katalysierte chemische Umsetzungen in gasförmiger und/oder flüssiger Phase, die von zwei Stoffströmen im Gleich- oder Gegenstrom durchströmt werden, wobei ein sehr guter Wärmekontakt zum Katalysator sowie zwischen den beiden Strömen gewährleistet ist.

Die erfindungsgemäßen Reaktoren bestehen aus parallelen Strömungskanälen (5) für die beiden Stoffströme (9), (10), die durch ziehharmonikaartige Faltung einer Trennwand (1) entstehen. In den so gebildeten Falten sind Wellstrukturen (4) so angebracht, daß durchgehende Strömungskanäle (6) für die Fluidströme entstehen. Die Wellstrukturen (4) sind dabei in Material, Wandstärke und Befestigung so ausgebildet, daß sie gleichzeitig dienen als

- Abstandhalter zwischen den gegenüberliegenden Falten der Trennwand (1),
- Rippen für einen verbesserten Wärmetransport zu/von der Trennwand (1)
- Katalysatorträger.

Die Strömungskanäle sind nach außen durch ein Gehäuse mit Ein-/Ausgängen für die beiden Stoffströme versehen und an ihren Stirnseiten dicht verschlossen.



EP 0 885 653 A2

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft kompakte Reaktoren für katalysierte chemische Umsetzungen in gasförmiger oder flüssiger Phase, die von zwei Stoffströmen im Gleich- oder Gegenstrom durchströmt werden, wobei ein sehr guter Wärmekontakt zum Katalysator und zwischen den beiden Strömen gewährleistet ist.

Entsprechende Reaktoren werden für unterschiedliche Aufgabenstellungen in der chemischen Reaktionstechnik benötigt. So besteht bei sog. „isothermen“ Festbettreaktoren die Aufgabe, Gase an festen Katalysatoren so reagieren zu lassen, daß die entstehende oder benötigte Reaktionswärme möglichst direkt von einem Wärmeträgerfluid aufgenommen oder abgegeben werden kann. Bei autothermen Festbettreaktoren soll die Wärme der heißen Reaktionsgase möglichst direkt auf den kalt einströmenden Zulauf übertragen werden. Bei endothermen Reaktionen wäre die direkte Kopplung mit einer im gleichen Temperaturbereich ablaufenden exothermen Begleitreaktion wünschenswert. Außerdem erfordert eine optimale Reaktionsführung häufig die Einstellung von speziellen, örtlich veränderlichen Temperaturprofilen, was durch eine spezielle Wärmeträgerführung oder die Einstellung von unterschiedlichen Temperaturstufen des Wärmeträgers erreicht werden kann.

Technische Festbettreaktoren sind heute entweder in Form von Schütttschichtreaktoren oder als Monolithreaktoren im Einsatz. Eine Wärmezufuhr oder abfuhr in/aus Schütttschichtreaktoren gelingt, wenn man den Katalysator in Rohre packt, die von einem Wärmeträger umströmt werden, oder wenn man Rohrschlangen mit einem Wärmeträger in der Schüttung plaziert. Durch die dabei vorliegenden längeren Wärmetransportwege treten allerdings größere Temperaturunterschiede zwischen Katalysator und Wärmeträger mit negativen Auswirkungen auf die chemische Umsetzung auf. Es wurden daher unterschiedliche Konzepte für katalytische Wandreaktoren vorgeschlagen, bei denen der Katalysator direkt auf die Reaktorwand aufgebracht wird. Bisher hat sich keines dieser Konzepte durchsetzen können, da Katalysatoren in der Regel nach einer bestimmten Laufzeit ersetzt werden müssen, was für Wandreaktoren bisher nicht befriedigend gelöst ist.

Monolithreaktoren zeichnen sich im Gegensatz zu Schütttschichtreaktoren durch eine sehr regelmäßige Katalysatorstruktur mit gleichmäßigen Reaktionsbedingungen und niedrigem Druckverlust aus. Allerdings sind bisher trotz intensiver Bemühungen keine überzeugenden Konzepte bekannt geworden, Monolithkatalysatoren in üblichen Rohrbündelreaktoren einzusetzen. Monolithkatalysatoren werden deshalb bisher in aller Regel adiabatisch betrieben. Allerdings wurde von Rhone Poulenc vorgeschlagen, keramische Monolithe so zu präparieren, daß benachbarte Kanäle mit unterschiedlichen Fluiden durchströmt werden können. Bei einer Desaktivierung des Katalysators muß der gesamte

Monolith ausgewechselt werden. Außerdem bereitet die getrennte Anströmung unterschiedlicher Kanäle und die mechanisch/thermische Stabilität keramischer Monolithe erhebliche Schwierigkeiten bei einem großtechnischen Einsatz.

Eine in jüngster Zeit sehr stark vertretene Forderung betrifft sehr kompakte Reaktoren mit intensivem Wärmeaustausch zu einem fluiden Wärmeträger. Unter dem Schlagwort „Mikroreaktoren“ werden solche Reaktoren für die dezentrale Produktion potentiell gefährlicher Chemikalien vorgeschlagen. Allerdings sind die dafür bekanntgewordenen Konzepte und Fertigungsverfahren aus der Mikroelektronik oder der Mikrosystemtechnik entlehnt und damit eher für Strukturen im  $\mu$ -Bereich als im mm-Bereich geeignet. Strömungskanäle mit Abmessungen kleiner als 1 mm erscheinen aber für viele reaktionstechnische Anforderungen weder erforderlich noch vorteilhaft.

Es stellt sich somit die Aufgabe, ein Reaktorkonzept zu entwickeln, bei dem der Katalysator ähnlich wie bei einem katalytischen Wandreaktor in sehr engem Kontakt zum Wärmeträger angeordnet ist, aber trotzdem einfach aus dem Reaktor entfernt und ersetzt werden kann. Dabei sollen die Strömungskanäle einen ähnlich guten Stoffübergang und niedrigen Druckverlust wie Monolithkatalysatoren besitzen. Außerdem soll der Reaktor einfach aufgebaut und zu fertigen sein und ein weites Spektrum unterschiedlicher Strömungsführungen von Fluid und Wärmeträger ermöglichen.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch einen Reaktor mit den Merkmalen des Anspruchs 1 gelöst. Nach Art eines Plattenwärmeaustauschers wird Reaktionsfluid und Wärmeträger in benachbarten Kanälen im Gleich- oder Gegenstrom geführt. Der Katalysator ist wie bei metallischen Autoabgaskatalysatoren auf einer Wellstruktur aufgebracht. Diese wird so in den Fluidkanälen befestigt, daß sie gleichzeitig Strömungskanäle für das Fluid bildet, als Abstandhalter zwischen den Wärmetauscherplatten fungiert und durch ihren direkten Kontakt für einen verbesserten Wärmetransport von den Wänden zum Katalysator und in das Fluid sorgt. Auf der Wärmeträgerseite werden vergleichbare Wellstrukturen, ggf. mit anderen Abmessungen und ohne Katalysatorbeschichtung, eingesetzt. Um die katalysatorbeschichteten Wellstrukturen ggf. auswechseln zu können, sind die Plattenpakete nicht wie in gelöteten oder geschweißten Plattenwärmetauschern starr miteinander verbunden, sondern flexibel aufgebaut. Das wird dadurch erreicht, daß die Trennwände aus einem längeren Blechband durch ziehharmonikaartige Faltung hergestellt sind und von einem äußeren, demontierbaren Gehäuse umschlossen werden. Eine Konstruktion mit einer ziehharmonikaformigen Trennwand ist von Luft-Gegenstromwärmetauschern (System Thermo-Z) im Prinzip bekannt. Sie dient hier aber der Auswechselbarkeit der katalytisch beschichteten Wellstrukturen.

Die in Anspruch 1 beschriebene Grundform der Erfindung kann in geeigneter Weise ergänzt und an die

spezifischen reaktionstechnischen Anforderungen angepaßt werden. Entsprechende Ausgestaltungen sind in den Unteransprüchen beschrieben und werden anhand der nachfolgenden Abbildungen erläutert.

Es zeigen

Figur 1 einen Ausschnitt des erfindungsgemäßen Reaktors, bei dem der äußere Mantel entfernt ist

Figur 2 einen Reaktorquerschnitt und eine Frontansicht

Figur 3 drei Möglichkeiten für die Führung der Strömungswege

Figur 4 vier Varianten für die Ausbildung der Wellstrukturen 4 und

Figur 5 eine Variante in zylinderförmiger Anordnung

Fig. 1 zeigt einen Ausschnitt des erfindungsgemäßen Reaktors, bei dem der äußere Mantel einschließlich der oberen Abdeckung entfernt ist. Fluid A und B treten entlang der Strömungswege 9 und 10 an entgegengesetzten Seiten der ziehharmonikaförmigen Trennwand 1 in den Reaktor ein, verteilen sich auf die jeweiligen Strömungskanäle 5 und werden nach unten abgelenkt. Im Beispiel ist Fluid A (Strömungsweg 9) z.B. ein Reaktandengemisch, Fluid B (Strömungsweg 10) ein nicht reagierender Wärmeträger. Beide Fluide durchströmen die Strömungspfade 6, die von den Wellstrukturen 4 und den Wänden 1 gebildet werden. Die Wellstrukturen 4 sind im Strömungsweg 9 über eine bestimmte Länge mit Katalysator beschichtet.

Daran findet die Reaktion von Fluid A statt. Die freigesetzte oder benötigte Reaktionswärme wird zum großen Teil durch Wärmeleitung in der Struktur 4 auf die Wand 1 übertragen, da die Struktur beide Nachbarmauern berührt. Sie wird auf der anderen Wandseite in ähnlicher Weise von einer anderen Struktur 4 aufgenommen und über diese Struktur oder direkt an das Wärmeträgerfluid B übertragen. Am unteren Ende des Reaktors hört die Struktur 4 früher auf als die Wand 1, so daß die Strömungswege 9, 10 in umgekehrter Richtung wie am gezeigten Kopf den Reaktor verlassen. Ein hier nicht gezeigter Reaktormantel umschließt den dargestellten Innenbereich von allen Seiten, so daß die Fluide A, B nur durch Einlässe am Kopf ein- und am Reaktorfuß austreten können.

Fig. 2 zeigt einen Schnitt (links) und eine Frontansicht (rechts) des Reaktors von Fig. 1 mit den beiden Fluid-einlässen 7 und -auslässen 8 und den Abdichtungen der Strömungskanäle 5 an beiden Stirnseiten 11, 12 des Reaktors.

Fig. 3 zeigt Reaktorvarianten mit drei unterschiedlichen Strömungsführungen für die beiden Fluide A, B. Die linke Konfiguration bietet sich an, wenn eine exotherme

Reaktion (Fluid A) so mit einer endothermen Reaktion (Fluid B) gekoppelt wird, daß die Reaktionswärme der exothermen Reaktion den Wärmebedarf der endothermen Reaktion liefert.

Fig. 3, Mitte, ist eine typische Konfiguration für die autotherme Reaktionsführung einer schwach exothermen Reaktion des Fluids A, wobei im unteren Teil des Reaktors der kalte Zulauf durch den warmen Ablauf vorgeheizt wird. Am Kopf befindet sich eine zusätzliche Heiz- oder Kühleinrichtung 13, durch die der Reaktor gezündet oder während des Betriebs Wärme abgeführt werden kann. Die beiden Stutzen am Kopf dienen zur Zuführung eines Fluid B (Seiteneinspeisung) bzw. zum Abzug eines Teilstroms.

Fig. 3, rechts, zeigt eine weitere Gestaltungsmöglichkeit, bei der ein Wärmeträger B im oberen Teil des Reaktors im Gegenstrom und im unteren Teil im Gleichstrom zu einem reagierenden Fluid A geführt wird.

Fig. 4 zeigt geeignete Querschnittsformen für die Wellstrukturen 4. Neben der Ausbildung mit geraden, durchgehenden Kanälen können auch technisch übliche Formen mit zickzackförmiger Kanalführung zum Einsatz kommen. Außerdem kann es zweckmäßig sein, im Bereich der Reaktionszone eine Folge von Katalysatoren unterschiedlicher Aktivität oder Spezifität einzusetzen. Das läßt sich in dem erfindungsgemäßen Reaktor einfach dadurch erreichen, daß Abschnitte von Wellstrukturen 4, die mit unterschiedlichem Katalysator beschichtet sind, hintereinander angeordnet werden.

Schließlich kann es auch sinnvoll sein, größere Strömungsquerschnitte auf der Seite des Fluids A als auf der Seite des Fluids B vorzusehen. Das läßt sich erfindungsgemäß einfach dadurch erreichen, daß bei der Faltung der ziehharmonikaförmigen Trennwand 1 unterschiedliche Breiten der Strömungskanäle 5 vorgesehen werden und Strukturen 4 mit unterschiedlichen, an die Breite der Kanäle 5 angepaßten Amplituden verwendet werden.

Eine besondere Ausgestaltung der letztgenannten Variante stellt die Anordnung der ziehharmonikaförmigen Trennwand in einem Ringspalt gemäß Fig. 5 dar. Fluid A tritt in diesem Beispiel durch das Innenrohr 14 ein und verteilt sich auf die Strömungspfade 6, die durch die Wellstruktur 4 mit den inneren Falten der Trennwand 1 gebildet werden. Am unteren Ende des Reaktors strömt es in gleicher Weise in das Innenrohr 14 zurück. Fluid B wird über einen Ringraum 15 im äußeren Mantel zugeführt und strömt im Gleich- oder Gegenstrom zu Fluid A durch die äußeren Falten der Trennwand 1 durch den Apparat, wonach es den Apparat über einen weiteren Ringraum 15 verläßt. Die in Fig. 2 Mitte und rechts angegebenen Varianten lassen sich in analoger Weise in einer Konfiguration nach Fig. 5 realisieren. Ist Fluid B in Fig. 5 ein flüssiger Wärmeträger, so können die Wellstrukturen 4 zur Verbesserung des Wärmeübergangs in den Strömungskanälen 5 für Fluid B gegebenenfalls auch entfallen.

Zur besseren Verteilung der Fluide A, B auf die Breite

der Strömungskanäle 5 kann es sinnvoll sein, im Ein- und ggf. auch im Auslaufbereich 7, 8 Spacerstrukturen einzusetzen, die für eine gute Quervermischung sorgen. Dafür bieten sich z.B. gekreuzte Stegstrukturen, Drahtgeflechte oder gekreuzte Wellstrukturen an. Außerdem kann es sinnvoll sein, den Spalt zwischen der gefalteten Trennwand 1 und dem Reaktormantel 2 bzw. dem Innenrohr 4 durch Dichtmaterial (Dichtmatten, Blähton) zusätzlich abzudichten.

#### Bezugszeichenliste:

- 1 Trennwand (ziehharmonikaförmig)
- 2 Reaktormantel
- 3 Katalysator (auf Strukturen 4 aufgebracht)
- 4 Wellstruktur
- 5 Strömungskanäle, gebildet durch Falten von 1
- 6 Strömungspfade zwischen Wellstruktur 4 und Wand 1
- 7 Fluideinlaß in Reaktor
- 8 Fluidauslaß aus Reaktor
- 9 Strömungsweg Fluid 1
- 10 Strömungsweg Fluid 2
- 11 obere Stirnseite des Reaktors
- 12 untere Stirnseite des Reaktors
- 13 Heiz-/Kühleinrichtung an Stirnseite
- 14 Innenrohr
- 15 ringförmiger Verteilkanal im Reaktormantel 2

#### Patentansprüche

1. Reaktor für katalysierte Gas-, Gas/Flüssigkeits- und Flüssigkeitsreaktionen mit zwei parallelen, durch fluidundurchlässige Wände getrennten Strömungswegen, dadurch gekennzeichnet, daß die die beiden Strömungswege (9), (10) trennenden Wände (1) in Strömungsrichtung ziehharmonikaförmig gefaltet sind, so daß die einzelnen Falten Strömungskanäle (5) bilden, und der Katalysator (3) auf profilierten Strukturen (4) aufgebracht ist, die sich in diesen Kanälen (5) befinden. Die Strukturen (4) bilden dabei zum einen mit der Wand durchgehende Strömungspfade (6), bewirken zum zweiten einen guten Wärmeleitungsfluß zu den beiden benachbarten Wänden (1) und sorgen zum dritten für einen konstanten Abstand zwischen benachbarten Wänden (1). Der Reaktor wird nach außen durch einen Mantel (2) abgeschlossen, der Ein- und Auslässe (7), (8) für die beiden Strömungswege (9), (10) enthält. An den beiden Stirnseiten (11), (12) sind alle Strömungskanäle verschlossen.
2. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein Strömungsweg (9) für die reagierenden Fluide und ein Strömungsweg (10) für einen strömenden Wärmeträger vorgesehen ist, wobei die profilierte Struktur (4) auf der Wärmeträgersseite keinen Katalysator enthält oder ganz fehlt.

3. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß in beiden Strömungswegen (9), (10) gleiche oder unterschiedliche Reaktionen im Gleich- oder Gegenstrom ablaufen, so daß durch den Wärmeaustausch zwischen den beiden Strömungswegen (9), (10) eine besonders günstige Reaktionsführung erfolgt.

4. Reaktor nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß es sich bei den Strukturen (4) um durchgehend gewellte Strukturen von sinusförmiger, dreieckförmiger, trapezförmiger oder rechteckförmiger Profilierung handelt, so daß die Strömungspfade (6) im wesentlichen in Längsrichtung verlaufen, wobei die Strukturen (4) im Bereich der Ein- und Auslässe (7), (8) so abgeschrägt oder ausgespart sind, daß eine Zu-/Abströmung über die gesamte Tiefe der Strömungskanäle (5) erfolgt.

5. Reaktor nach Anspruch 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß in die für reagierende Fluide vorgesehenen Strömungskanäle (5) Strukturen (4) so hintereinander angeordnet werden, daß sich Stufungen in der katalytischen Aktivität und Spezifität ergeben.

6. Reaktor nach Anspruch 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich zu den Ein- und Auslässen (7), (8) an den Reaktorenden weitere Ein- und Auslässe über der Reaktorlänge verteilt angeordnet sind.

7. Reaktor nach Anspruch 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die ziehharmonikaförmig gefaltete Wand (1) so um ein Innenrohr (14) gelegt ist, daß die Strömungswege (9) und (10) im Ringraum, gebildet vom Innenrohr (14) und dem äußeren Reaktormantel (2), verlaufen und Zu- sowie Ablauf für ein Fluid über das Innenrohr (14), für ein anderes Fluid über einen ringförmigen Verteilkanal (15) im Außenmantel (2) erfolgen.

8. Reaktor nach Anspruch 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die ziehharmonikaförmige Wand (1) auf einer bestimmten Höhe des Reaktors durchbrochen ist oder fehlt, so daß sich die Strömungswege (9), (10) ganz oder teilweise vereinigen.

9. Reaktor nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Wand (1) an einem Ende des Reaktors fehlt oder durchbrochen ist und der Zulauf für Strömungsweg (9) sowie der Ablauf für Strömungsweg (10) beide am anderen Ende des Reaktor liegen, so daß sich ein Gegenstrom des gleichen Fluids mit einseitiger Umlenkung einstellt.

10. Reaktor nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich der Umlenkung eine Heiz-

zung oder Kühlung angebracht ist.

11. Reaktor nach Anspruch 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß im Reaktionsbereich auch die Wände (1) mit Katalysator beschichtet sind. 5
12. Reaktor nach Anspruch 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß in den wellstrukturfreien Teilen der Strömungskanäle (5) im Bereich der Ein- oder Auslaufbereiche (7), (8) Spacerstrukturen eingesetzt werden, die für eine gute Verteilung des Fluids über die gesamte Tiefe der Strömungskanäle (5) sorgen. 10
13. Apparat nach Anspruch 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß er vorwiegend oder ausschließlich zum Wärmetausch zwischen mehreren Fluiden eingesetzt wird. 15
14. Apparat nach Anspruch 1 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß der Apparat durch Profilierung und Verbindung von Kunststofffolien oder metallischen Blechen hergestellt wird. 20
15. Apparat nach Anspruch 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß der Apparat teilweise durch Extrusion aus polymeren oder keramischen Formmassen oder durch Extrusion oder Stranggießen aus Metallen hergestellt wird. 25

30

35

40

45

50

55

